

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.

Q/A-70198-1/KMJ/KMK/JML

WEST

☐ Generate Collection

JP 2-219603

L1: Entry 132 of 265

File: JPAB

Sep 3, 1990

PUB-NO: JP402219603A

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 02219603 A

TITLE: LAMINATING METHOD FOR CERAMIC GREEN SHEET

PUBN-DATE: September 3, 1990

INVENTOR-INFORMATION:

NAME

COUNTRY

SATO, TAKESHI

OGAWA, KAZUNOBU

MIYAZAWA, OSAMU

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME

COUNTRY

mitsubishi mining & cement co ltd

APPL-NO: JP01042624

APPL-DATE: February 22, 1989

US-CL-CURRENT: 156/89.11; 156/246, 438/753

INT-CL (IPC): B28B 1/30; B28B 11/02

ABSTRACT:

PURPOSE: To obtain a laminating method wherein working efficiency of laminating is made high and position drifting of time of laminating time is difficult to be caused by passing a second ceramic green sheet together with a first ceramic green sheet with an adhesive applied thereto through a pair of laminating rolls set at the prescribed pressing pressure and laminating both the green sheets and drying the adhesive before laminating or after laminating.

CONSTITUTION: A first ceramic green sheet 10 is rewound from a first roll 11 and passed through a pair of coating rolls 12, 13 and furthermore passed through a drier 16 set at 30°C at the velocity of 2m/min. The single side of the green sheet 10 is uniformly coated with an adhesive A at 60μm coating thickness by a pair of coating rolls 12, 13. A second ceramic green sheet 20 is rewound from a second roll 21 and passed together with the first ceramic green sheet 10 with the adhesive A applied thereto through a pair of laminating rolls 14, 15 set at 5-20kg/cm² pressing pressure. Thereby the second ceramic green sheet 20 is laminated on the first ceramic green sheet 10. The laminated green sheet 30 is taken up on a roll 31.

COPYRIGHT: (C)1990,JPO&Japio

⑨ 日本国特許庁(JP)

⑩ 特許出願公開

⑪ 公開特許公報(A)

平2-219603

⑫ Int. Cl.¹

識別記号

庁内整理番号

⑬ 公開 平成2年(1990)9月3日

B 28 B 1/30
// B 28 B 11/02

6639-4 G
7344-4 G

審査請求 有 請求項の数 3 (全5頁)

⑭ 発明の名称 セラミックグリーンシートの積層方法

⑮ 特 願 平1-42624

⑯ 出 願 平1(1989)2月22日

⑰ 発 明 者 佐 藤 武 埼玉県秩父郡横瀬町大字横瀬2270番地 三菱鉱業セメント株式会社セラミックス研究所内
⑰ 発 明 者 小 川 和 伸 埼玉県秩父郡横瀬町大字横瀬2270番地 三菱鉱業セメント株式会社セラミックス研究所内
⑰ 発 明 者 宮 沢 修 埼玉県秩父郡横瀬町大字横瀬2270番地 三菱鉱業セメント株式会社セラミックス研究所内
⑱ 出 願 人 三菱鉱業セメント株式会社 東京都千代田区丸の内1丁目5番1号
⑲ 代 理 人 弁理士 須田 正義

明 細 書

1. 発明の名称

セラミックグリーンシートの積層方法

2. 特許請求の範囲

1) 一種又は二種以上のアルコキシドを加水分解して得られたコロイドに有機バインダを添加混合してセラミックスリップを調製し、このスリップを成膜乾燥して成形された第1セラミックグリーンシートを前記第1セラミックグリーンシートと同様に成形され前記第1セラミックグリーンシートと焼成収縮に大きな差異のない第2セラミックグリーンシートに積層するセラミックグリーンシートの積層方法であって、

前記第1セラミックグリーンシートの片面に接着剤を塗工し、

前記第2セラミックグリーンシートを前記接着剤を塗工した第1セラミックグリーンシートとともにプレス圧を5～20 kg/cm²に設定した一対のラミネートロールに通して前記第1セラミックグリーンシートに前記第2セラミックグリーンシ

ートを積層し、

この積層前又は積層後に前記第1セラミックグリーンシートに塗工した接着剤を乾燥する

ことを特徴とするセラミックグリーンシートの積層方法。

2) 非水系のセラミックグリーンシートを水系の接着剤により積層する請求項1記載のセラミックグリーンシートの積層方法。

3) 水系のセラミックグリーンシートを非水系の接着剤により積層する請求項1記載のセラミックグリーンシートの積層方法。

3. 発明の詳細な説明

〔産業上の利用分野〕

本発明はセラミックグリーンシートの積層方法に関する。更に詳しくは熱可塑性の乏しいグリーンシートに適する積層方法に関するものである。

〔従来の技術〕

従来、複数枚のセラミックグリーンシートを積層する方法として、熱可塑性の有機バインダを含むグリーンシートを複数枚重ね合わせた後、室温

或いは必要に応じて加熱し、 $200 \sim 500 \text{ kg/cm}^2$ 程度の高圧で熱圧着している。

〔発明が解決しようとする課題〕

しかし、従来の方法はプレス機のプレス面に依りてグリーンシートを切断し、その切断されたシートを重ね合わせる必要があるため、積層の作業効率に劣る不具合がある。また従来の方法は高圧のため重ね合わせたグリーンシートが圧着時にずれ易い問題点があり、またグリーンシートに含まれる有機バインダに熱可塑性が無い或いは非常に少ない場合には、セラミックグリーンシートを加熱しながら加圧してもグリーンシート同士の接着力が十分でなく、従来の熱圧着の積層方法では積層できない欠点があった。

本発明の目的は、積層の作業効率が高く、積層したときの位置ずれが生じにくく、また熱可塑性が無い或いは非常に少ない有機バインダを含むグリーンシートを積層するに適したセラミックグリーンシートの積層方法を提供することにある。

<セラミックグリーンシート>

本発明のグリーンシートは、一種又は二種以上のアルコキシドを加水分解して得られたコロイドに有機バインダを添加混合してセラミックスリッパを調製し、このスリッパを成膜乾燥して成形されたものである。このスリッパを構成するコロイド粒子は数 $100 \sim$ 数 1000 \AA の範囲の極めて微小な粒徑を有するため、有機バインダはこれらの微粒子を結合させるため、結合力に富んだものが用いられ、例えばポリビニルアルコール、ポリビニルブチラール、メチルセルロース、ポリアクリル酸、ポリメタクリル酸等が挙げられる。

グリーンシートは水を分散媒とするセラミックスリッパから作られた水系のもの以外に、水酸基を有するアルコール等を分散媒とするセラミックスリッパから作られた非水系のものを含む。

<積層>

本発明の積層は、プレス圧を $5 \sim 20 \text{ kg/cm}^2$ に設定した一対のラミネートロールの間を複数枚のセラミックグリーンシートを通すことにより行

〔課題を解決するための手段〕

上記目的を達成するために、本発明は、一種又は二種以上のアルコキシドを加水分解して得られたコロイドに有機バインダを添加混合してセラミックスリッパを調製し、このスリッパを成膜乾燥して成形された第1セラミックグリーンシートをこのグリーンシートと同様に成形され、このグリーンシートと焼成収縮に大きな差異のない第2セラミックグリーンシートに積層するセラミックグリーンシートの積層方法であって、第1セラミックグリーンシートの片面に接着剤を塗工し、第2セラミックグリーンシートを前記接着剤を塗工した第1セラミックグリーンシートとともにプレス圧を $5 \sim 20 \text{ kg/cm}^2$ に設定した一対のラミネートロールに通して前記第1セラミックグリーンシートに前記第2セラミックグリーンシートを積層し、この積層前又は積層後に前記第1セラミックグリーンシートに塗工した接着剤を乾燥することを特徴とする。

われる。プレス圧を 5 kg/cm^2 未満にすると、接着が十分でなく、 20 kg/cm^2 を越えると、グリーンシートに歪みを与える恐れがあるため、この範囲に設定される。

積層は、単一のグリーンシート同士を積層する以外に二層以上のグリーンシートに単一もしくは二層以上のグリーンシートを積層することもできる。これらのグリーンシートは、焼成後の変形を防止するため、互いに焼成収縮に大きな差異のないものであることが必要である。

また本発明は接着剤を塗工した後、積層する前に乾燥するドライラミネート法以外に、接着剤を塗工して積層した後に乾燥するウェットラミネート法を採用することができる。

<接着剤>

本発明の接着剤は、その溶剤がグリーンシートに吸収されると、グリーンシートの引張強度が極端に低下し、シートが破断したり、しわやうねりが発生するので、溶剤がグリーンシートに吸収されるような接着剤は使用できない。すなわち、水

系のグリーンシートには非水系の接着剤、例えばアクリル系樹脂、ブチラール系樹脂、ビニール系樹脂等が用いられ、非水系のグリーンシートにはセルローズ誘導体、アクリル系エマルジョン、酢酸ビニルエマルジョン等が用いられる。

またドライラミネート法には乾燥後接着するタイプのものが用いられ、ウエットラミネート法には接着後乾燥するタイプのものが用いられる。この接着剤は塗工厚がドライラミネート法では30～100 μ mの範囲に、またウエットラミネート法ではこれより少ない5～30 μ mの範囲になるように塗工される。これらの下限値より薄いと塗膜の欠陥が発生しやすく、上限値を越えるとグリーンシート同士の間隔が大きくなりすぎて、焼成後に積層したグリーンシートが剥離する恐れがある。

<乾燥>

本発明の乾燥は、グリーンシートの走行速度が1～3m/分程度の遅い速度である場合には、特別に加熱する必要はなく室温乾燥で足りるが、こ

れより高速にする場合には40～50℃程度の温風乾燥することが望ましい。

<積層後の工程>

積層されたグリーンシートは、必要に応じてカッティング、巻取りが行われ、更に所定の形状に打ち抜かれ、或いはカッティングされた後、焼成されて所望の製品となる。

【発明の効果】

以上述べたように、従来のセラミックグリーンシートの積層方法はプレス加工によるパッチ操作であったものが、本発明によればシート状態で積層できるため、連続生産が可能となり、積層の作業効率が高い。特に、熱圧着によらないため、積層したときの位置ずれが生じにくく、また熱可塑性が無い或いは非常に少ない有機バインダを含むグリーンシートを積層することができる。

また従来のセラミックグリーンシートでは数1000 μ m以上の粒径のセラミックス粉体を含むため、一対のラミネートロールによる積層では、接合界面におけるセラミックス粒子同士の接

触率が低く、焼結が不十分で積層したシートが剥離する恐れがあったものが、本発明ではグリーンシートを構成する粒子の径が極めて小さいため、焼結が良好で剥離しにくい利点がある。

更に従来のセラミックグリーンシートはバインダの粒子結合力が十分に高くないため、シート状で引張ると伸びやすく、本発明の方法を用いることができないが、本発明のグリーンシートは粒径の微小の程度に応じて強度のある有機バインダを使用しているため、シート状に張設して巻取っても、伸びが小さく焼成後の変形を十分に小さく押えることができる。

【実施例】

次に本発明の実施例を図面に基づいて詳しく説明する。

<実施例1>

第1図に示すように、この例はドライラミネート法である。第1ロール11には第1セラミックグリーンシート10が巻取られ、第2ロール21には第2セラミックグリーンシート20が巻取ら

れる。一対のコーティングロール12及び13と一対のラミネートロール14及び15の間には乾燥機16が配置される。17はグラビアロールであって、接着剤槽18の接着剤Aをドクタブレード19によりコーティングロール12に均一に塗布する。接着剤Aは酢酸エチルを溶剤とするアクリル系樹脂からなる。

この例ではセラミックグリーンシート10及び20はともに次の製法によって得られたグリーンシートである。すなわち、アルミニウムイソプロポキシド $[\text{Al}(\text{C}_3\text{H}_7\text{O})_3]$ を加水分解してペーマイト $[\text{Al}(\text{OH})_3]$ を生成させ、これにpH2～4に調整した水を加えて解膠することによって、安定な懸ペーマイトゾルを得る。また一方、マグネシウムメトキシドを加水分解してブルーサイトゾルを得る。この両者をモル比で、



の割合で混合して原料コロイドを調製する。

この原料コロイドに、親水性有機バインダとしてポリビニルアルコールとポリ酢酸ビニルとの共

重合体をコロイドの分散相100重量%に対して40重量%添加混合した後、この原料コロイドを分散相15重量%、有機バインダ6重量%及び分散媒である水79重量%になるまで濃縮してセラミックスリップを得る。

このセラミックスリップを移動担体である高密度ポリエチレンテープ上にドクターブレードキャストニングにより厚さ1.2mmになるようにコーティングし、このポリエチレンテープを乾燥してセラミックスリップの分散媒である水を脱離させて厚さ0.1mmのグリーンシートを得る。

上記製法で作られた第1セラミックグリーンシート10を第1ロール11から巻き戻して一対のコーティングロール12及び13の間を通し、更に30℃に温度設定された乾燥機16に2m/分の速度で通す。一対のコーティングロール12及び13で接着剤Aをグリーンシート10の片面に均一に塗工厚60μmで塗工する。

上記製法で作られた第2セラミックグリーンシート20を第2ロール21から巻き戻し、接着剤

Aを塗工した第1セラミックグリーンシート10とともにプレス圧を10kg/cm²に設定した一対のラミネートロール14及び15に通して第1セラミックグリーンシート10に第2セラミックグリーンシート20を積層する。積層したグリーンシート30はロール31に巻き取られる。

なお、三層以上の積層グリーンシートを作る場合には、ロール31に巻き取ったグリーンシートを第1ロール11又は第2ロール21のいずれか一方、又は双方にセットし、上記積層操作を必要回数繰り返せばよい。

<実施例2>

第2図に示すように、この例はウエットラミネート法である。第1図と同一符号は同一の構成部品を示す。この例では一対のラミネートロール32及び33のうちロール32がコーティングロールの機能を兼ねる。

接着剤Aはエタノールを溶剤とするブチラール系樹脂からなり、セラミックグリーンシート10及び20はともに次の製法によって得られたグ

リーンシートである。すなわち実施例1で得られた酸ベーマイトゾルを原料コロイドとして、この酸ベーマイトゾルにポリビニルアルコールをコロイドの分散相100重量%に対して40重量%添加混合した後、固形分が15重量%になるように濃縮してセラミックスリップを得る。このセラミックスリップを実施例1と同一方法で成膜乾燥し、厚さ0.1mmのグリーンシートを得る。

上記製法で作られた第1セラミックグリーンシート10を第1ロール11から巻き戻し、同時に第2ロール21から第2セラミックグリーンシート20を巻き戻してそれぞれ一対のラミネートロール32及び33の間を通し、更にガイドロール34を介して30℃に温度設定された乾燥機16に2m/分の速度で通す。ロール17がコーティングロール32上のグリーンシート10の片面に接着剤Aを均一に塗工厚10μmで塗工し、一対のロール32及び33が同時にグリーンシート10にグリーンシート20を積層する。

接着剤が乾燥された積層グリーンシート30は

ロール35及び36で引き取られ、ロール31に巻き取られる。

実施例1及び実施例2で得られた積層グリーンシート30は、積層前のグリーンシート10及び20が粒径数100～数1000Åの原料コロイドから作られているため、プレス圧が低くても接合界面における粒子同士の接触率が高く、後工程の焼成工程で十分に接着し、焼結状態が良好で両シートは剥離しない。また上記有機バインダはセラミックスリップを構成する微粒子の粒径に対応して強い粒子結合力を有しているため、積層中にグリーンシート10及び20に無用の伸びを与えず、焼成後の予期しない変形を防止する。

4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明実施例のセラミックグリーンシート積層装置の構成図。

第2図は本発明の別の実施例のセラミックグリーンシート積層装置の構成図。

A: 接着剤

10: 第1セラミックグリーンシート、

- 14, 15, 32, 33 : ラミネートロール、
 16 : 乾燥機、
 20 : 第2セラミックグリーンシート、
 30 : 積層セラミックグリーンシート。

特許出願人 三菱紅土セメント株式会社
 代理人弁理士 須田正徳

